

## PRODUCTION OF LAMINATED GLASS

**Publication number:** JP6305785 (A)

**Publication date:** 1994-11-01

**Inventor(s):** OOHAYASHI MINA; TAKAMATSU YUKISHIGE

**Applicant(s):** MITSUBISHI RAYON CO

**Classification:**

- international: C03C27/12; C08F2/02; C08F2/48; C08F20/26; C08F20/34; C08F220/28; C08F220/36; C08F290/00; C08F299/02; C03C27/12; C08F2/02; C08F2/46; C08F20/00; C08F220/00; C08F290/00; C08F299/00; (IPC1-7): C03C27/12; C08F2/02; C08F2/48; C08F220/28; C08F220/36; C08F299/02

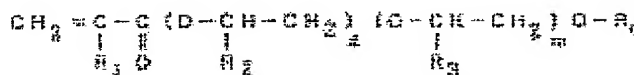
- European:

**Application number:** JP19930103039 19930428

**Priority number(s):** JP19930103039 19930428

### Abstract of JP 6305785 (A)

**PURPOSE:** To produce the laminated glass which does not generate striae even at the time of using a thick interlayer of the laminated glass and has excellent physical properties by using a specific photosetting composition as the adhesive and irradiating the composition with ultraviolet rays under specific conditions to harden it. **CONSTITUTION:** A photosetting composition consisting essentially of (a), (b) and (c) described below is used as the adhesive. As for the hardening conditions, the first irradiation by ultraviolet rays of a 10 to 1000mW/cm<sup>2</sup> light intensity at 360nm wavelength and a 1000 to 5000mJ/cm<sup>2</sup> integrated light quantity and, if necessary, the second irradiation by ultraviolet rays of a 0.1 to 10mW/cm<sup>2</sup> light intensity at 360nm wavelength are performed so that the total integrated light quantity of the first and second irradiation is at least 3000mJ/cm<sup>2</sup>. (a) is e.g. a radically polymerizable compound represented by the formula, wherein each of R<sub>1</sub>, R<sub>2</sub> and R<sub>3</sub> is a hydrogen atom or a methyl group; R<sub>4</sub> is a C1 to C12 alkyl group, etc.; (l) and (m) are 0 or ≥1 integers excluding the case of l=m=0. (b) is a non-radically-polymerizable compound such as polyalkylene glycol, etc., (c) is a photopolymerization initiator.



Data supplied from the esp@cenet database — Worldwide



(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平6-305785

(43) 公開日 平成6年(1994)11月1日

(51) Int.Cl. <sup>5</sup>	識別記号	序内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 3 C 27/12	A	8216-4G		
C 0 8 F 2/02	MAS	7442-4J		
2/48	MDH	7442-4J		
220/28	MML	7242-4J		
220/36	MMW	7242-4J		

審査請求 未請求 請求項の数 1 O L (全 9 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願平5-103039

(22) 出願日 平成5年(1993)4月28日

(71) 出願人 000006035

三菱レイヨン株式会社

東京都中央区京橋2丁目3番19号

(72) 発明者 大林 美奈

愛知県名古屋市東区砂田橋四丁目1番60号

三菱レイヨン株式会社商品開発研究所内

(72) 発明者 高松 幸茂

愛知県名古屋市東区砂田橋四丁目1番60号

三菱レイヨン株式会社商品開発研究所内

(74) 代理人 弁理士 若林 忠

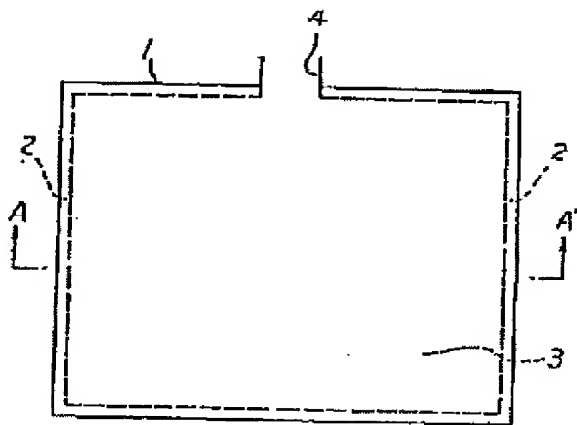
(54) 【発明の名称】 合わせ硝子の製造方法

(57) 【要約】

【構成】 複数の硝子(1)の隙間内に下記化合物(a)(b)(c)からなる光硬化性組成物(3)を注入し、波長360nmでの光強度が10mW/cm<sup>2</sup>~1000mW/cm<sup>2</sup>、積算光量が1000mJ/cm<sup>2</sup>~5000mJ/cm<sup>2</sup>の紫外線を照射する第1の照射と、必要に応じて波長360nmでの光強度が0.1mW/cm<sup>2</sup>~10mW/cm<sup>2</sup>の紫外線を照射する第2の照射を行ない該光硬化性組成物を硬化させ、かつ第1の照射と第2の照射の積算光量の総量が少なくとも3000mJ/cm<sup>2</sup>であることを特徴とする合わせ硝子の製造方法。

(a) 特定構造のラジカル重合性化合物、(b) ポリアルキレングリコールのモノエーテル等の特定の非ラジカル重合性化合物、(c) 光重合開始剤。

【効果】 合わせ硝子の中間層が数cmと厚くても硬化時の硬化性組成物の対流や脈理が発生しない。



1

2

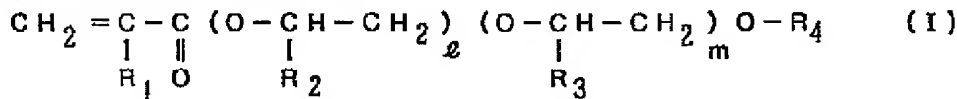
## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 複数の硝子を互いに離して隙間を形成し、該隙間内に下記化合物(a)、(b)および(c)を主成分とする光硬化性組成物を注入し、波長360nmでの光強度が10mW/cm<sup>2</sup>～1000mW/cm<sup>2</sup>、積算光量が1000mJ/cm<sup>2</sup>～5000mJ/cm<sup>2</sup>の紫外線を照射する第1の照射と、必要に応じて波長360nmでの光強度が0.1mW/cm<sup>2</sup>～10\*

\*mW/cm<sup>2</sup>の紫外線を照射する第2の照射を行ない該光硬化性組成物を硬化させ、かつ該第1の照射の積算光量と必要に応じて行なう該第2の照射の積算光量の総量が少なくとも3000mJ/cm<sup>2</sup>であることを特徴とする合わせ硝子の製造方法。

(a) 下記一般式(I)、(II)または(III)で表わされる少なくとも1種のラジカル重合性化合物。

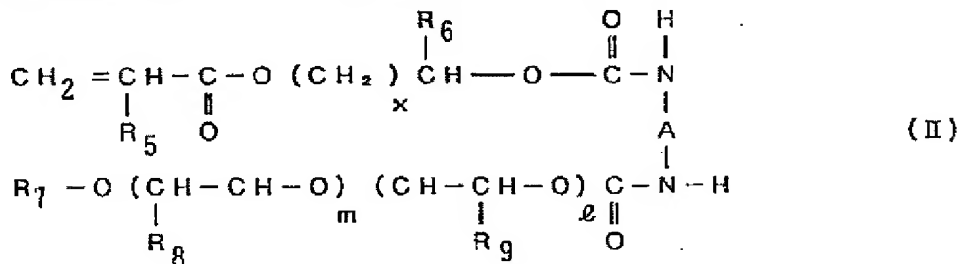
【化1】



(式I中、R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、R<sub>3</sub>は水素原子またはメチル基、R<sub>4</sub>は炭素数1～12のアルキル基または炭素数1～12のアルキル基を有するアルキルフェニル基、l及※

※lは0または1以上の整数(ただしl=m=0を除く)

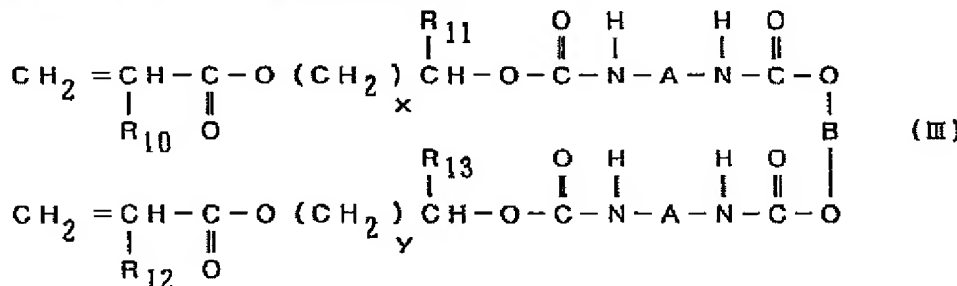
【化2】



(式II中、R<sub>5</sub>、R<sub>6</sub>、R<sub>7</sub>は水素原子またはメチル基、R<sub>8</sub>は水素原子または炭素数1～12のアルキル基、xは1以上の整数、R<sub>7</sub>は炭素数1～12のアルキル基または炭素数1～12のアルキル基を有するアルキル

★ルフェニル基、l及びmは0または1以上の整数(ただしl=m=0を除く)、Aはポリイソシアネート残基である。)

【化3】



(式III中、R<sub>10</sub>、R<sub>11</sub>は水素原子またはメチル基、R<sub>12</sub>、R<sub>13</sub>は水素原子または炭素数1～12のアルキル基、x、yは1以上の整数、Aはポリイソシアネート残基、Bはポリアルキレングリコール残基)

(b) ポリアルキレングリコール、ポリアルキレングリコールのモノエーテル又はモノエステル、及びポリアルキレングリコールのジエーテル又はジエステルから選ばれる少なくとも1種の非ラジカル重合性化合物。

(c) 光重合開始剤。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は新規な合わせ硝子の製造方法に関し、特に大型テレビの前面硝子に用いる合わせ硝子の製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】 複数枚の硝子板を重ね合わせ接着した合わせ硝子は安全性の面から優れており、自動車の安全硝子、大型テレビの爆縮防止用硝子などに利用されている。このような合わせ硝子の硝子間に介在する中間層(接着剤硬化物層等)には、硝子が破壊しても破損しない強靱性ととも、硝子との接着性にも優れ、かつ十分な透明性を有していることが要求される。

【0003】 合わせ硝子を製造する従来法の一つとして、硝子板の間に中間層となる樹脂膜体を挿入して予備圧着させた後、オートクレーブ中で加温しながら最終的な圧着を行う方法がある。しかし、この従来法は工程が複雑であり、オートクレーブ処理を要するため連続的な生産が難しく、製造コストも高くなる。

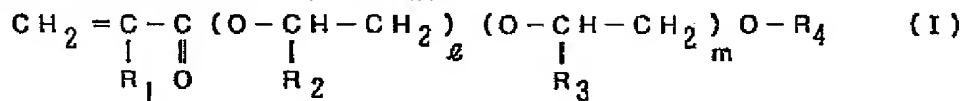
3

【0004】合わせ硝子を製造する他の従来法として、スパーサーを介して硝子板を重ね、その端をポリエステルテープ、ブチルゴム等のゴムシート、または光硬化型樹脂等の樹脂シーラントでシールし、液状接着剤組成物を注入し、熱または光によってこの接着剤組成物を硬化させる方法がある。この従来法は、前述のオートクレープを使用する方法に比べて生産性が優れているので、テレビの爆縮防止用硝子の製造などに実用化されつつある。

【0005】また本願出願人は、特定成分から成る硝子用接着剤について先に出願した（特開昭63-100045号）。この光硬化型接着剤を用いれば、接着剤の硬化物層と硝子とが剥離せず、また硬化物の硬化ヒケの少ない合わせ硝子製品を製造することができる。更には最終製品として得られる硝子に不良品が生じた場合でも、シーラント及び中間層の接着剤硬化物を安全に切断分離することにより硝子を回収再使用することも可能となる。この光硬化型接着剤を硬化させる方法としては、硬化収縮に伴う内部応力を小さくして硬化物と硝子との剥離を防止するために、低出力のランプを用いてゆっくり硬化させる方法がとられていた。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、近年においては、合わせ硝子製品の大型化の要請が更に強まり、特にCRTディスプレイを用いるテレビの用途では従来よりワイドな平面画面を有するテレビの要求が多い。そして、これに用いる合わせ硝子製品においては、重ね合わせる隙間部分を従来より厚くする、すなわち接着剤硬化物層を数mmより最大数cmまで厚くする必要が生じてきた。ところが、先述した硝子用接着剤を用い、低出力のランプを用いてゆっくり硬化させた場合 \*

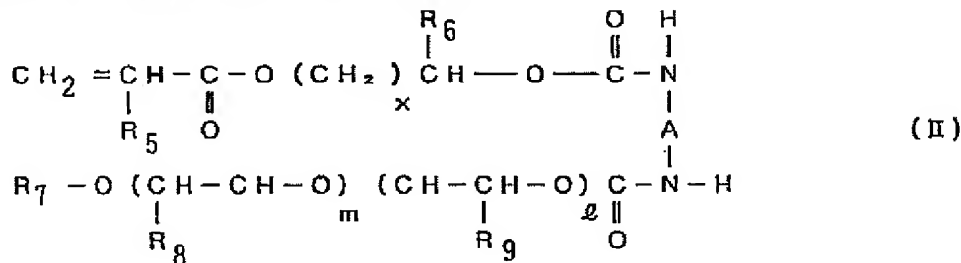


（式I中、 $\text{R}_1$ 、 $\text{R}_2$ 、 $\text{R}_3$ は水素原子またはメチル基、 $\text{R}_4$ は炭素数1～12のアルキル基または炭素数1～12のアルキル基を有するアルキルフェニル基、1及びmは0または1以上の整数（ただし1=m=0を除く）

※>）

【0011】

【化5】



（式II中、 $\text{R}_5$ 、 $\text{R}_8$ 、 $\text{R}_9$ は水素原子またはメチル基、 $\text{R}_6$ は水素原子または炭素数1～12のアルキル基、 $\text{x}$ は1以上の整数、 $\text{R}_7$ は炭素数1～12のアルキル基または炭素数1～12のアルキル基を有するアルキルフェニル基、1及びmは0または1以上の整数（ただし1=m=0を除く）、Aはポリイソシアネート残基で

\*は、接着剤硬化物層を厚くすると、硬化時に接着剤組成物の対流が起こり、そのため「脈理」とよばれる光学ムラが発生し易くなる。この脈理が合わせ硝子内に少しでも存在すると、合わせ硝子を通して像がゆがんで見えるので、テレビの商品価値が大きく低下させることになる。

【0007】本発明は、このような従来技術の課題を解決すべくなされたものである。すなわち本発明の目的は、合わせ硝子の中間層を厚くしても脈理が生じず、かつ物性の優れた合わせ硝子の製造方法を提供することを目的とする。

【0008】

【課題を解決するための手段】本発明の上記目的は、複数の硝子を互いに離して隙間を形成し、該隙間内に下記化合物（a）、（b）および（c）を主成分とする光硬化性組成物を注入し、波長360nmでの光強度が10mW/cm<sup>2</sup>～1000mW/cm<sup>2</sup>、積算光量が1000mJ/cm<sup>2</sup>～5000mJ/cm<sup>2</sup>の紫外線を照射する第1の照射と、必要に応じて波長360nmでの光強度が0.1mW/cm<sup>2</sup>～10mW/cm<sup>2</sup>の紫外線を照射する第2の照射を行ない該光硬化性組成物を硬化させ、かつ該第1の照射の積算光量と必要に応じて行なう該第2の照射の積算光量の総量が少なくとも3000mJ/cm<sup>2</sup>であることを特徴とする合わせ硝子の製造方法により達成できる。

【0009】（a）下記一般式（I）、（II）または（II）で表わされる少なくとも1種のラジカル重合性化合物。

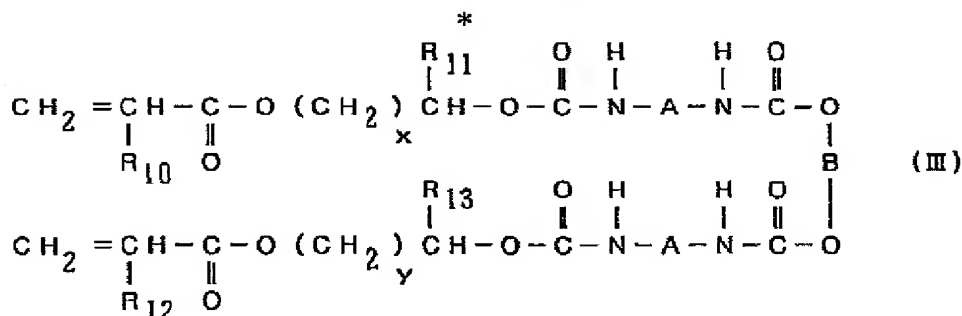
【0010】

【化4】

ある。)

【0012】

\*【化6】



(式III中、 $\text{R}_{10}$ 、 $\text{R}_{12}$ は水素原子またはメチル基、 $\text{R}_{11}$ 、 $\text{R}_{13}$ は水素原子または炭素数1~12のアルキル基、 $x$ 、 $y$ は1以上の整数、Aはポリイソシアネート残基、Bはポリアルキレングリコール残基)

(b) ポリアルキレングリコール、ポリアルキレングリコールのモノエーテル又はモノエステル、及びポリアルキレングリコールのジエーテル又はジエステルから選ばれる少なくとも1種の非ラジカル重合性化合物。

【0013】(c) 光重合開始剤。

【0014】なお光硬化性組成物の注入は、前記隙間の周囲を注入口を残してシーリング材でシールした後、注入口より前記隙間内に注入することが望ましい。

【0015】

【作用】本発明において使用する光硬化性組成物は、特定の成分(a)~(c)を主成分とするので、①、粘度が低く注入作業がし易い、②、硬化物と硝子との接着力が大きい、③、硬化物が切断し易い、④、硬化収縮量が小さい等、合わせ硝子の中間層として好適な特性を有している。

【0016】ラジカル重合性化合物[(a)成分]は、前記一般式(I)、(II)または(III)で表わされる少なくとも1種の化合物である。一般式(I)で表わされる化合物は、ポリアルキレングリコールのモノエーテルと(メタ)アクリル酸との縮合物として得ることができる。一般式(II)で表わされる化合物は、ポリアルキレングリコールのモノエーテルとジイソシアネート及びモノヒドロキシアルキル(メタ)アクリレートとのモル比1/1/1の反応物(ウレタンモノアクリレート)として得ることができる。一般式(III)で表わされる化合物は、ポリアルキレングリコールとジイソシアネートとモノヒドロキシアルキル(メタ)アクリレートとのモル比1/2/2の反応物として得ることができる。

【0017】ラジカル重合性化合物[(a)成分]の配合量は5~95重量%が好ましい。この配合量が5重量%未満だと硬化不良となる傾向にある。一方、この配合量が95重量%を越えると硬化時の収縮が大きくなり、これに伴う硬化時の内部応力、および加熱、冷却時における硝子と中間層との熱膨張率の差に伴う内部応力によって、中間層が硝子から剥離する傾向にある。

【0018】また、本発明の効果を損なわない範囲内で、このラジカル重合性化合物[(a)成分]以外の種々のラジカル重合性のモノマー、オリゴマー類等を、諸性能の改良のため併用することができる。例えば、硬化物と硝子との接着性向上のために、2-ヒドロキシエチル(メタ)アクリレート等のヒドロキシル基含有モノマー、(メタ)アクリル酸等のカルボキシル基含有モノマーなどを併用できる。また例えば、硬化物の凝集力向上のために、架橋成分となる種々の多官能モノマー、オリゴマー類を併用できる。更には、コストダウンのために比較的低コストの汎用モノマー、例えば2-エチルヘキシル(メタ)アクリレート等のアルキル(メタ)アクリレート類を併用できる。

【0019】非ラジカル重合性化合物[(b)成分]は、ポリアルキレングリコール、ポリアルキレングリコールのモノエーテル又はモノエステル、及びポリアルキレングリコールのジエーテル又はジエステルから選ばれる少なくとも1種の化合物である。この非ラジカル重合性化合物[(b)成分]は、ラジカル重合性化合物[(a)成分]の硬化時の収縮に基づく光硬化性組成物の硬化収縮を緩和する作用を奏する。合わせ硝子を、特に大型テレビの爆縮防止用硝子に使用する場合、非ラジカル重合性化合物[(b)成分]としては、蒸発速度の低く、ラジカル重合性化合物[(a)成分]との相溶性が良く、さらにラジカル重合性化合物[(a)成分]の硬化物中に均一分散し透明性の良いものを用いることが好ましい。

【0020】非ラジカル重合性化合物[(b)成分]の配合量は5~95重量%が好ましい。この配合量が95重量%を越えると硬化不良となる傾向にある。一方、この配合量が5重量%未満だと硬化収縮が大きくなり、中間層が硝子から剥離が起き易い傾向にある。

【0021】また、本発明の効果を損なわない範囲内で、この非ラジカル重合性化合物[(b)成分]以外の種々の非ラジカル重合性化合物、例えばアルコール類、エステル類、エーテル類、ケトン類、炭化水素類等を併用することもできる。

【0022】この様な特定の構造を有するラジカル重合性化合物[(a)成分]および非ラジカル重合性化合物[(b)成分]を含むことにより、光硬化性組成物は光硬

化性を奏するとともに、硬化時の収縮に伴う内部応力、及び加熱時、冷却時に生ずる内部応力を有効に除去できる。

【0023】光重合開始剤〔c〕成分は、光硬化性組成物を硬化させるために必要な成分であり、単独または組み合わせて用いられる。具体的には、ベンゾインプロピルエーテル、ベンゾインエチルエーテル、ベンジルジメチルケタール、フェニルアセトフェノン、アセトフェノン、チオキサントン、アントラキノン、2-エチルアントラキノン、カンファーキノン、2-ベンジル-2-ジメチルアミノ-1-(4-モルフォリノフェニル)ブタン-1-オン、2-メチル[4-(メチルチオ)フェニル]-2-モルフォリノプロパン-1-オン、2-メチル[4-(メチルチオ)フェニル]-2-モルフォリノブタン-1-オン、ベンゾフェノン、キサントフルオレノン、ベンズアルデヒド、3-メチルアセトフェノン、4-クロロベンゾフェノン、4, 4'-ジアミノベンゾフェノン、1-(4-イソプロピルフェニル)-2-ヒドロキシ-2-メチルプロパン-1-オン、2, 4, 6-トリメチルベンゾイルジフェニルフォスフィンオキサイド、2-ヒドロキシ-2-メチル-1-フェニルプロパン-1-オン等が挙げられる。また、分子中に少なくとも1個のアクリロイル基又はメタクリロイル基を有する光重合開始剤も用いることができる。

【0024】また、吸収波長が360nm以上にある光重合開始剤を用いると、更に深部硬化性が良くなる。これによって合わせ硝子の中間層(光硬化性組成物の硬化物層)を更に厚くすることも可能となる。

【0025】光重合開始剤〔c〕成分の配合量は0.01~10重量部が望ましく、更に0.01~3重量部が好ましい。この配合量が0.01重量部未満では硬化速度が極端に遅くなる傾向にある。一方、この配合量が10重量部を越えると、開始剤自身による着色のため外観上問題となる傾向にある。

【0026】更に光硬化性組成物中には、硝子との接着性を向上させるためシランカップリング剤を添加することが特に有効である。このシランカップリング剤としては、従来より公知の種々のものを用いることができる。ただし、耐水性及び接着剤の経時安定性の点から、γ-グリシドキシプロピルトリメトキシシランタイプのものが好適である。また、硝子の表面を予めシランカップリング剤処理を施すことにより、中間硬化物と硝子との接着性を向上させることもできる。

【0027】また光硬化性組成物中には、合わせ硝子に意匠性を付与すべく種々の染料、顔料等を添加することも諸性能を損なわない範囲で、用途に応じて行なうことができる。

【0028】次に、本発明の合わせ硝子の製造方法の態様を、図1~図3を参照しつつ詳細に説明する。

【0029】本発明においては、まず図1および図2に

示す様に、複数の硝子を互いに離して隙間を形成し、その隙間内に光硬化性組成物を注入する。図1は2枚の硝子板の隙間に光硬化性組成物を充填した状態を表す平面図であり、図2は図1のA-A'線の断面図である。この態様においては、まず一方の硝子板1の周端部(注入口4となる部分は除く)にスペーサーを兼ねたシーリング材2を施し、その上に他方の硝子板1'を重ね、この2枚の硝子板1, 1'をシーリング材2の接着力により接合する。次に、注入口4から光硬化性組成物3を注入し充填する。

【0030】この硝子1, 1'は、無機硝子に限定されない。例えばポリメタクリレート板、ポリカーボネート板など、従来より合わせ硝子に用いられる各種の公知材料を使用し得る。

【0031】このシーリング材2は、光硬化性組成物を隙間にシールし得る材料であればよく、例えばテープ、ゴムシート、接着剤樹脂などが用い得る。特に、硝子との接着力が大きく、硝子との間で切断し易く、充填される光硬化性組成物の硬化による残存応力を吸収でき、光硬化性組成物の硬化に伴う収縮に追従できる等の諸特性を兼ね備えた材料を用いることが好ましい。とりわけ光硬化性組成物の硬化物層の厚さが増すと、光硬化性組成物の収縮に伴う体積変化の総量が大きくなるので、ポリエステルテープ等のテープでシールし、四隅のスペーサーとしてブチルゴムなどのゴムシートや樹脂シーラントなどを用いることが望ましい。

【0032】光硬化性組成物3は、シーリング材2として用いることもできる。特に、この光硬化性組成物をシーリング材2として用いれば、中間層とシーリング材2との界面での剥離が生じ難く好適である。

【0033】次に図3に示す様に、隙間に充填した光硬化性組成物3に対して第1の紫外線照射および必要に応じて第2の紫外線照射を施し硬化させ合せ硝子を得る。図3は、合わせ硝子の光硬化処理の様子を示す模式図である。この態様においては、光源5から第1および第2の紫外線照射によって光硬化性組成物2を硬化させ、硝子板1と接着剤組成物3の硬化物と硝子板1'とが一体となった合わせ硝子を得る。

【0034】ここで照射する光は、一般に、波長領域250nm~450nmに属する紫外線である。この光源5としては、低圧水銀灯、高圧水銀灯、アーク灯、ガリウムランプ等、放射波長200~450nmのランプが有効であるが、特に、硬化の開始には、高圧水銀灯やメタルハライドランプ、フュージョン社製無電極ランプなどが出力が高く好適であり、硬化継続にはケミカルランプなどが低出力で好適である。

【0035】第1の照射は、波長360nmでの光強度が10mW/cm<sup>2</sup>~1000mW/cm<sup>2</sup>、積算光量が1000mJ/cm<sup>2</sup>~5000mJ/cm<sup>2</sup>の紫外線を照射することにより行う。この第1の照射によって

光硬化性組成物の硬化が開始する。この第1の照射によれば硬化物層を厚くしても透過光の光強度が十分であり、光硬化性組成物中の光重合開始剤が接着剤硬化物層の隅々まで一斉に励起することが可能となり一斉に硬化反応が開始する。したがって、光硬化性組成物の硬化物層の硬化反応ムラより発生する接着剤組成物の対流が起こらない。なお、第1の照射は必要に応じて複数回行うこともできる。

【0036】第1の照射において、波長360nmでの光強度が10mW/cm<sup>2</sup>未満の場合は、硬化物層が数cmの厚膜であると脈理が発生する。一方、これが1000mW/cm<sup>2</sup>を越えると無駄になるエネルギーが多くなり、装置が必要以上に大きくなって製造コストが上がる。また第1の紫外線照射において、積算光量が1000mJ/cm<sup>2</sup>未満の場合は、脈理が生じ易くなる。一方、これが5000mJ/cm<sup>2</sup>を越えると無駄になるエネルギーが多くなり、製造コストが上がる。

【0037】第1の照射の後、ただちに、必要に応じて第2の紫外線照射を行う。この第2の紫外線照射は、波長360nmにおける光強度が0.1mW/cm<sup>2</sup>～10mW/cm<sup>2</sup>で、第1と第2の照射の積算光量の総量が少なくとも3000mJ/cm<sup>2</sup>になるように行う。これを行うことによって、残存モノマーをエネルギー効率よく低減させることができ、硬化物の物性を上昇させることができる。

【0038】この第2の照射は必要に応じて行なうものである。これは第1の照射の積算光量が3000mJ/cm<sup>2</sup>未満の場合には必須であるが、第1照射が3000mJ/cm<sup>2</sup>以上の場合でも行っても良い。第2の照射が0.1mW/cm<sup>2</sup>未満の場合は脈理が発生しやすくなり、また硬化に要する時間が長くなりすぎる傾向にある。また、第1照射から第2照射までの時間が数分間に及ぶと、その間に脈理が発生し、商品として不適当になり易いので、第1の照射が終了したら速やかに第2の照射を行うことが望ましい。

【0039】本発明における硝子用接着剤組成物の硬化の際、照射する光の積算光量としては、360nmにおいて、3000mJ/cm<sup>2</sup>～100,000mJ/cm<sup>2</sup>が好ましい。積算光量が3000mJ/cm<sup>2</sup>未満の場合、接着剤硬化物が硬化不足となったり、脈理が生じたりする。また、100,000mJ/cm<sup>2</sup>を越えて照射すると、硬化反応には無駄になるエネルギーが多くなるため、また照射時間が長くなって生産性が悪くなる傾向にあるので好ましくない。

【0040】

【実施例】以下、実施例により更に本発明を詳細に説明する。なお、以下の記載において「部」は特記しない限り「重量部」を意味する。

【0041】＜実施例1＞

(シーリング材用接着剤の調製) ポリプロピレングリコ

ールモノブチルエーテル(三洋化成工業株式会社製、商品名ニューボールLB-385)とイソホロンジイソシアネートと2-ヒドロキシプロピルアクリレートとをモル比1/1/1で反応させて得たウレタンアクリレート30部、ポリエチレングリコールノニルフェニルアクリレート(東亜合成化学工業株式会社製、商品名アロニックスM-111)100部、2-ヒドロキシエチルメタクリレート100部、ポリエチレングリコールメチルメタクリレート(新中村化学工業株式会社製、商品名NK-エステルM-90G)10部、ポリプロピレングリコールモノブチルエーテル(三洋化成工業株式会社製、商品名ニューボールLB-65)30部、シランカップリング剤(ユニオンカーバイド社製、商品名A-187)1部、光重合開始剤(チバガイギー社製、商品名ダロキユアー1173)1部、チクソ性付与剤(日本アエロジル社製、商品名アエロジル#300)8部からなるシーリング材用接着剤を調製した。

【0042】(光硬化性組成物の調製) ポリプロピレングリコールモノブチルエーテル(三洋化成工業株式会社製、商品名ニューボールLB-385)とイソホロンジイソシアネートと2-ヒドロキシプロピルアクリレートとをモル比1/1/1で反応させて得たウレタンアクリレート30部、ポリエチレングリコールノニルフェニルアクリレート(東亜合成化学工業株式会社製、商品名アロニックスM-111)50部、2-ヒドロキシエチルメタクリレート50部、ポリエチレングリコールメチルメタクリレート(新中村化学工業株式会社製、商品名NK-エステルM-90G)10部、ポリプロピレングリコールモノブチルエーテル(三洋化成工業株式会社製、商品名ニューボールLB-65)60部、シランカップリング剤(ユニオンカーバイド社製、商品名A-187)1部、光重合開始剤(チバガイギー社製、商品名ダロキユアー1173)1部からなる隙間充填用光硬化性組成物を調製した。

【0043】(合わせ硝子の製造) 図1～図3に示した様な合わせ硝子を次の様にして作製した。

【0044】まず無処理硝子(120×120×2mm)の上にサランラップを敷き、高さ23mmになるように先に調製したシーリング材を塗布した。更に、その上にサランラップをかぶせ、同じ大きさの無処理硝子を、硝子間の厚みが20mmになるように圧着し、ケミカルランプ(三菱電機株式会社製、光化学用蛍光ランプ、商品名ネオルミスーパーFL40SBL-360)で20分照射して、シーリング材を硬化させた。次にシーリング材をはがし、縦20mm、横20mm、高さ20mmの小片に切り出した。これらの切片を、無処理硝子(640×840×3mm)1の4隅に1つずつ置き、同一の大きさの硝子1'を重ねて圧着した。そして、上部中央の注入口部を50mmあけて、幅40mmのポリエステルテープで2枚の硝子をシーリングした。



同様にして厚さ3mmの合わせ硝子も作製した。

【0045】次いで上記2種類の試料を、注入口を上にし硝子板を垂直に立て、それぞれの2枚の硝子板の間に先に調製した光硬化性組成物を注入し、ポリエステルテープで注入口を塞いだ。

【0046】これらの硝子板を水平保持したまま、80W/cm×3灯の高圧水銀灯の下を、直角方向に2m/分の速度で通過させた後、ただちにケミカルランプにて40分間全面一括照射し光硬化性組成物を硬化させて合わせ硝子を得た。

【0047】＜実施例2＞実施例1と全く同様にして硝子板（積層体）を作製し、80W/cm×3灯の高圧水銀灯の下を、直角方向に1m/分の速度で通過させた後、ただちにケミカルランプにて30分間全面一括照射し、光硬化性組成物を硬化させて合わせ硝子を得た。

【0048】＜実施例3＞実施例1と全く同様にして硝子板（積層体）を作製し、80W/cm×3灯の高圧水銀灯の下を、直角方向に1m/分の速度で2回通過させて光硬化性組成物を硬化させて合わせ硝子を得た。

【0049】＜実施例4＞実施例1と全く同様にして硝子板（積層体）を作製し、50W/cm×3灯の高圧水銀灯の下を、直角方向に1m/分の速度で通過させた後、ただちにケミカルランプにて40分間全面一括照射し光硬化性組成物を硬化させて合わせ硝子を得た。

【0050】＜実施例5＞実施例1と全く同様にして硝子板（積層体）を作製し、50W/cm×3灯の高圧水銀灯の下を、直角方向に1m/分の速度で3回通過させて光硬化性組成物を硬化させて合わせ硝子を得た。

【0051】＜実施例6＞無処理硝子の代わりにポリメチルメタクリレート板を用いた以外は実施例1と全く同様にして硝子板（積層体）を作製し、50W/cm×3

灯の高圧水銀灯の下を、直角方向に1m/分の速度で3回通過させ、光硬化性組成物を硬化させて合わせ硝子を得た。

【0052】＜実施例7＞無処理硝子の代わりにポリカーボネート板を用いた以外は実施例1と全く同様にして硝子板（積層体）を作製し、50W/cm×3灯の高圧水銀灯の下を、直角方向に1m/分の速度で3回通過させ、光硬化性組成物を硬化させて合わせ硝子を得た。

【0053】＜比較例1＞実施例1と全く同様にして硝子板を作製し、80W/cm×3灯の高圧水銀灯の下を、直角方向に2m/分の速度で通過させ、光硬化性組成物を硬化させて合わせ硝子を得た。

【0054】＜比較例2＞実施例1と全く同様にして硝子板を作製し、ケミカルランプにて90分間一括照射し、光硬化性組成物を硬化させて合わせ硝子を得た。

【0055】＜参考例1＞実施例1と全く同様にして硝子板を作製し、80W/cm×3灯の高圧水銀灯の下を、直角方向に2m/分の速度で通過させた後、5分後にケミカルランプにて40分間全面一括照射し光硬化性組成物を硬化させて合わせ硝子を得た。

【0056】＜評価＞上記各実施例、比較例、参考例の脈理の状態、基材との密着性について評価した結果を表1に示す。この表に示す様に、実施例1～7は硬化物層の厚さが3mmのものはもちろんのこと、20mmのものも脈理が現れず良好なものであった。一方、比較例および参考例の接着剤硬化層の厚さが20mmのものには脈理が生じ、本テストサイズのCRTの場合有効画面内に脈理があるため、実用に耐えないものであった。また、比較例1では基材との接着性も劣っていた。

【0057】

【表1】

表 1

	脈理の状態*1		基材との接着性*2 (20mm厚さ)	第1の照射の ピーク強度 (mW/cm <sup>2</sup> ) (360nmにて)	第1の照射の 積算光量 (mJ/cm <sup>2</sup> ) (360nmにて)	第2の照射の ピーク強度 (mW/cm <sup>2</sup> ) (360nmにて)	第2の照射の 積算光量 (mJ/cm <sup>2</sup> ) (360nmにて)	トータルでの 積算光量 (mJ/cm <sup>2</sup> ) (360nmにて)
	20mm厚さ	3mm厚さ						
実施例 1	○	○	○	80	1000	1.2	2900	3900
2	○	○	○	80	2000	1.2	2400	4400
3	○	○	○	80	4000	—	0	4000
4	○	○	○	50	1500	1.2	2900	4400
5	○	○	○	50	4300	—	0	4300
6	○	○	○	50	4300	—	0	4300
7	○	○	○	50	4300	—	0	4300
比較例 1	×	○	×	80	1000	—	0	1000
2	×	○	○	1.2	6400	—	0	6400
参考例 1	×	○	○	80	1000	1.2	2900	3900

\*1 脈理の状態

○: 脈理が全く無く良好  
 ○: 脈理が生じない良好  
 ×: 脈理が生じ不良  
 ○: 硝子とのハガレが全く無く接着状態極めて良好  
 ×: 硝子とのハガレが生じ不良  
 ○: 硝子とのハガレがほとんど無く接着状態良好  
 ×: 硝子とのハガレが生じ不良

\*2 接着性

【0058】

【発明の効果】以上説明した様に本発明によれば、合わせ硝子の中間層（接着剤としての光硬化性組成物の硬化層）が数cmと厚いものであっても、硬化時に光硬化性組成物の対流が起こることなく、良好に硬化し、そのため「脈理」すなわち光学ムラが発生しなくなった。

【図面の簡単な説明】

【図1】2枚の硝子板の隙間に光硬化性組成物を注入した状態を表す平面図である。

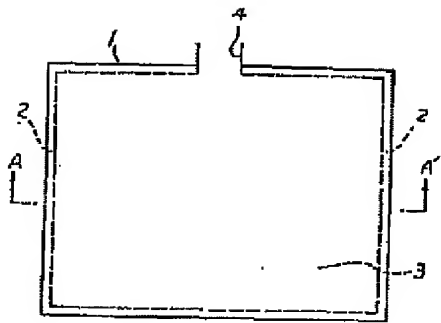
【図2】図1中のA-A'線の断面図である。

【図3】合わせ硝子の光硬化処理の様子を示す模式図である。

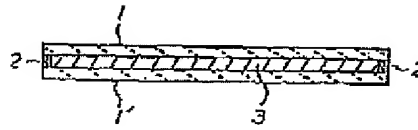
【符号の説明】

- 1, 1' 硝子板  
 2 シーリング材  
 3 光硬化性組成物  
 4 光硬化性組成物の注入口  
 5 ランプ

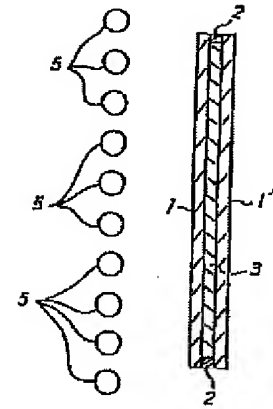
【図1】



【図2】



【図3】



フロントページの続き

(51) Int. Cl. <sup>5</sup>

C 0 8 F 299/02

識別記号

M R R

片内整理番号

7442-4 J

F I

技術表示箇所